

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2005 年 10 月 20 日 (20.10.2005)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2005/097445 A1(51) 国際特許分類⁷: B27N 3/04, B29C
43/02 // B29K 1:00, B29L 9:00, 31:10

(21) 国際出願番号: PCT/JP2005/005497

(22) 国際出願日: 2005 年 3 月 25 日 (25.03.2005)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願2004-109122 2004 年 4 月 1 日 (01.04.2004) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): トヨタ紡織株式会社 (TOYOTA BOSHOKU KABUSHIKI

KAISHA) [JP/JP]; 〒4488651 愛知県刈谷市豊田町 1 丁目 1 番地 Aichi (JP). 日本油脂株式会社 (NOF CORPORATION) [JP/JP]; 〒1506019 東京都渋谷区恵比寿 4 丁目 20 番 3 号 Tokyo (JP).

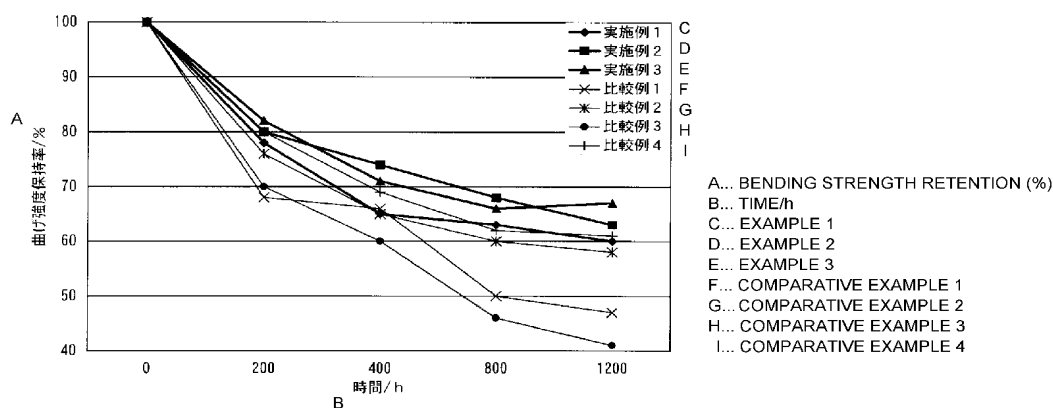
(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 羽柴 正典 (HASHIBA, Masanori) [JP/JP]; 〒4488651 愛知県刈谷市豊田町 1 丁目 1 番地 トヨタ紡織株式会社内 Aichi (JP). 川尻 秀樹 (KAWASHIRI, Hideki) [JP/JP]; 〒4488651 愛知県刈谷市豊田町 1 丁目 1 番地 トヨタ紡織株式会社内 Aichi (JP). 五百蔵 賢一 (IOROI, Kenichi) [JP/JP]; 〒6600095 兵庫県尼崎市大浜町 1 丁目 56 番地 日本油脂株式会社内 Hyogo (JP). 松井 耕一 (MATSUI, Kouichi) [JP/JP]; 〒6600095 兵庫県

[続葉有]

(54) Title: MOLDED WOODY ARTICLE AND PROCESS FOR PRODUCING MOLDED WOODY ARTICLE

(54) 発明の名称: 木質成形体および木質成形体の製造方法



(57) **Abstract:** A process for producing a molded article involving the step wherein a pre-molding material comprising kenaf fiber together with a dispersion of a polylactate-base aliphatic polyester and a compatible copolymer containing a first polymerizable monomer and a second polymerizable monomer is pressurized at such a temperature as softening the polylactate-base aliphatic polyester. The first polymerizable monomer is characterized by having a polymerizable double bond part and a hydrophilic group, while the second polymerizable monomer is characterized by having a polymerizable double bond part and an epoxy group. The compatible copolymer is compatible with the kenaf fiber owing to the hydrophilic group. Also, it is compatible with the polylactate-base aliphatic polyester owing to the epoxy group. Thus, it sufficiently binds to both of the kenaf fiber and the polylactate-base aliphatic polyester. As the results of the binding of the compatible comonomer to the polylactate-base aliphatic polyester, there arise an increase in the molecular weight and the formation of a three-dimensional structure.

(57) **要約:** 成形体の製造において、ケナフ繊維に、ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルと第1の重合性単量体と第2の重合性単量体とを含む相溶性共重合体とが分散状態で付与されている成形前材料を、前記ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルが軟化状態となる温度で加圧する工程を設ける。第1の重合性単量体は、重合性二重結合部分と親水性基とを有し、第2の重合性単量体は、重合性二重結合部分とエポキシ基とを有することを特徴とする。相溶性共重合体は、親水性基によってケナフ繊維となじみ、エポキシ基によってポリ乳酸系脂肪族ポリエステルとのなじむため、ケナフ繊維とポリ乳酸系脂肪族ポリエステルの両者に良好に結合する。また、相溶性共重合体がポリ乳酸系脂肪族ポリエステルに結合し、分子量の増大や、三次元構造の形成が起こる。

[続葉有]

WO 2005/097445 A1



尼崎市大浜町 1 丁目 5 6 番地 日本油脂株式会社内
Hyogo (JP).

(74) 代理人: 岡田 英彦 (OKADA, Hidehiko); 〒4600008 愛
知県名古屋市中区栄二丁目 1 0 番 1 9 号 名古屋商工
会議所ビル Aichi (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が
可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR,
BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU,
ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT,
LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI,
NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG,
SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US,
UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護
が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA,
SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ,
BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE,
BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU,
IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR),
OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML,
MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される
各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

木質成形体および木質成形体の製造方法

技術分野

- [0001] 本発明は、ケナフ繊維が樹脂で結合されている木質成形体及びその製法に関し、特にケナフ繊維が熱可塑性樹脂で結合されている木質成形体及びその製法に関する。

背景技術

- [0002] ケナフ繊維などの木質材料を、生分解性を有する熱可塑性樹脂、例えば、アセチルセルロース系樹脂、化学変性デンプン系樹脂、脂肪族ポリエステル系樹脂により結合させて成るボードなどの成形体が公知である(例えば、特許文献1参照。)。生分解性を有する樹脂は石油資源の利用低減という利点も有するため、とりわけ、生合成による大量生産が可能なポリ乳酸の種々の利用方法の開発が進められている。
- [0003] 特許文献1:特開2003-55871号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0004] ところで、ケナフ繊維は、吸水性が高く、膨潤する性質がある。このため、ケナフ繊維を含む成形体は、高湿な環境下に晒すと、ケナフ繊維の膨潤によって、厚みが増大したり、曲げ等に対する強度が低下したりすることがある。特に、生分解性樹脂を結合用樹脂、すなわちバインダとする成形体では、高温高湿な環境への曝露による劣化が他のバインダ樹脂の場合より大きい。これはケナフ繊維が吸収する水によって加水分解が進行することが原因であると推測される。また、ポリ乳酸系樹脂などのポリエステルをバインダとする場合、高温高湿な環境への曝露後の劣化が大きくなりやすく、これはケナフ繊維とのなじみが小さいためと考えられる。このような成形体の湿度に対する耐久性、すなわち耐湿性を向上させる方法としては、バインダ樹脂の配合割合をより多くする方法がある。しかしながら、成形体の重量が増大する点、また、コストの増加を抑制することができない点において好ましくない。
- [0005] そこで、本発明は、バインダ樹脂の配合量の増加を抑制して耐湿性を向上させたケ

ナフ繊維を含む成形体を製造する方法を提供することを課題とする。また、本発明は、併せて、バインダ樹脂の配合量の増加が抑制されており、且つ耐湿性が向上されているケナフ繊維を含む成形体を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

- [0006] 上記課題を解決するための本発明の一形態は、ケナフ繊維とポリ乳酸とから構成される成形体であって、成形体のみかけ密度が 0.7g/cm^3 以下であり、且つ 50°C 、相対湿度95%の環境に1200時間曝露した後の曲げ強さが曝露前の曲げ強さに対して60%以上である、成形体である。この成形体は、比較的軽量で、且つ耐湿性が向上されている。
- [0007] また、本発明の別の形態は、ケナフ繊維に、ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルと、第1の重合性単量体と第2の重合性単量体とを原料に含む相溶性共重合体とが分散状態で付与されている成形前材料を、前記ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルが軟化状態または熔融状態となる温度で加圧する工程を有する成形体の製造方法である。この方法において、前記第1の重合性単量体は、重合性二重結合部分と親水性基とを有し、前記第2の重合性単量体は、重合性二重結合部分とエポキシ基とを有することを特徴とする。この方法によれば、相溶性共重合体は、第1の重合性単量体に由来する親水性基によってケナフ繊維となじみ、第2の重合性単量体に由来するエポキシ基によってポリ乳酸系脂肪族ポリエステルとなじむ。したがって、加圧工程において、相溶性共重合体がケナフ繊維とポリ乳酸系脂肪族ポリエステルとの両者に良好に結合し、ケナフ繊維とポリ乳酸系脂肪族ポリエステル間の結合強度を向上させる。また、ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルの熔融温度以上の温度において、適宜、水分等との影響により、相溶性共重合体がポリ乳酸系脂肪族ポリエステルに結合する。この結合が、ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルの分子量を増大化したり、三次元構造を付与したりする。この結果、バインダ樹脂の配合割合を増大させることなく得られる成形体の耐湿性を向上させることができる。
- [0008] また、この方法における好ましい一形態では、第1の重合性単量体は親水性基としてアルキレンオキシド基を有する。この方法によれば、第1の重合性単量体の親水性基によってポリ乳酸系脂肪族ポリエステルの加水分解が促進されるおそれがなく、よ

り分子量の大きいポリ乳酸系脂肪族ポリエステルを良好に保持する成形体を得られる。

[0009] この方法におけるさらに好ましい形態では、第1の重合性単量体及び第2の重合性単量体の和の重量比は、前記ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルの0.1〜10wt%とする。この方法によれば、ケナフ繊維およびポリ乳酸系脂肪族ポリエステルによって得られる性質を良好に保持させて、且つ第1及び第2の重合性単量体による重量増加などを抑制して、ケナフ繊維とポリ乳酸系脂肪族ポリエステルとの結合強度および耐湿性が向上された成形体を得ることができる。

[0010] また、本方法における別の好ましい形態では、第1の重合性単量体をメトキシポリエチレングリコールモノ(メタ)アクリレートとし、第2の重合性単量体をグリシジル(メタ)アクリレートとする。この方法によれば、重合性、およびケナフ繊維及びポリ乳酸系脂肪族ポリエステルの両方に対する接着性の2点が良好な重合性単量体を用いることにより、ケナフ繊維とポリ乳酸系脂肪族ポリエステルとの結合強度を良好に向上させることができる。

[0011] また、本方法におけるさらに別の好ましい形態では、ケナフ繊維に、ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルおよび相溶性共重合体の水分散体を付与して成形前材料を作成する材料作成工程を備える。この方法によれば、ポリ乳酸系樹脂および第1、第2の重合性単量体をケナフ繊維に対して所望の割合で、分散状態に付与することが容易である。

[0012] 本方法における、別の好ましい形態では、ケナフ繊維に、ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルと相溶性共重合体とを含有するバインダ繊維を混合して成形前材料を作成する材料作成工程を備える。この方法によれば、第1及び第2の重合性単量体をポリ乳酸系脂肪族ポリエステルにより密接した状態でケナフ繊維中に分散させることができる。このため、ケナフ繊維とポリ乳酸系脂肪族ポリエステルとの間に効率よく介在させてケナフ繊維とポリ乳酸系脂肪族ポリエステルとの結合強度を高めることができる。

発明の効果

[0013] 本発明によれば、重量の増大を抑制して、より湿度の多い環境でも使用できる成形体を得ることができる。

図面の簡単な説明

[0014] [図1]実施例1〜3及び比較例1〜4の曲げ強さの時間変化を示す折れ線グラフである。

発明を実施するための最良の形態

[0015] 以下、本発明を実施するための最良の形態について説明する。本発明によって製造される木質成形体は、限定されるものではないが、典型的には、単層または複数層よりなるボードであり、適宜、曲げ成形や絞り成形されているボードである。限定されるものではないが、車両や建物、船舶などの室内面を構成する部材、具体的には内装壁材、床材、天井材や家具類の表装材に良好に適用される。車両では、例えば、ドアトリムやインストルメントパネル、ピラーのカバーなど、いわゆる自動車内装部品に適用することができる。

[0016] 以下、本発明の実施形態に係る成形体の製造方法について説明する。成形体は、ケナフ繊維と、バインダとしてのポリ乳酸系脂肪族ポリエステルと、相溶性重合体とを含む成形前材料をポリ乳酸系脂肪族ポリエステルの溶融温度以上の温度まで加熱した後、加圧成形することで得られる。

[0017] ケナフ繊維とは、草木類アオイ科の一年草であるケナフの靱皮部分より採取される繊維のことである。好ましくは、ケナフ繊維の繊維長は30mm以上、より好ましくは30mm以上50mm以下のものである。また、ケナフ繊維の直径は、好ましくは1.0mm以下、より好ましくは0.1mm以下のものである。繊維長が30mm未満の場合、曲げ物性の向上が認められない。また、直径が1.0mmを超える大きさの場合も曲げ物性が低下する。また、繊維の製法上これらと異なる形状のものが含まれる場合があるが、上記範囲外の材料は3%以下であることが好ましい。

[0018] ケナフ繊維は、公知の機械的または化学的な開繊によって得られる材料を選択できる。好ましくは、公知のパルプ化法や微生物処理によって化学的に開繊されているケナフ繊維を用いる。化学的に開繊された繊維は、リグニンやヘミセルロースなど繊維以外の他の成分が少なくとも部分的に除去されており、柔軟性を有するとともに、絡み合いなどによって成形体に良好な曲げ強さを付与できるため、好ましい。

[0019] ケナフ繊維の割合は、特に限定されないが、例えば、成形体の50重量%以上90

重量%以下である。50重量%未満であると、バインダ樹脂の量が増大し、成形体の重量が増大したり、コストが増大したりする。一方、ケナフ繊維が90重量%を超えると、バインダ樹脂による結合が十分に行われず、強度が低下したり、剥離しやすくなったりする。好ましくは、成形体中のケナフ繊維の量は、50重量%以上70重量%以下である。

[0020] ケナフ繊維は、予め微生物分解あるいはパルプ化法によって繊維化した後、ケナフ繊維をターボフィーダなどにより、開繊する。ケナフ繊維は、加圧工程に供される際、絡み合わせにより、あるいは、予備成形などにより、所定の形状を保持し得る状態でも良いし、繊維が堆積した状態であっても良い。例えば、ケナフ繊維を、カード、フリース、エアレイなどによって堆積させたウェブに形成することができる。また、このウェブを、適宜、ニードルパンチングなどにより、所定の形状を保持し得る程度に締めることができる。あるいは、後述するようにバインダ樹脂を繊維に形成して供給する形態では、予備成形によってバインダ樹脂により、ケナフ繊維を結合することも容易である。好ましくは、ケナフ繊維は、加圧処理より前にマット状、厚板状など所定の形状を保持できるように前成形しておく。より好ましくは、ニードルパンチングによる絡締処理をする。

[0021] バインダ樹脂としてのポリ乳酸系脂肪族ポリエステルは、例えば、乳酸、リンゴ酸、グルコース酸などのオキシ酸の重合体またはこれらの共重合体、ポリブチレンサクシネート、ポリエチレンサクシネート、ポリブチレンアジペートなどの二塩基酸ポリエステルの挙げることができる。また、特に、ポリ乳酸や、ポリ乳酸と他のヒドロキシカルボン酸との共重合体、ポリカプロラクトン、カプロラクトンと他のヒドロキシカルボン酸との共重合体、ポリ-3-ヒドロキシ酪酸エステルなど、ヒドロキシカルボン酸系脂肪族ポリエステルが好ましい。

[0022] バインダ樹脂は、ケナフ繊維に対してできるだけ少ない割合で付与すると、得られる成形体を軽量化でき、また、バインダ樹脂に関するコストを低減できる上で好ましい。一方、バインダ樹脂が少なすぎると、ケナフ繊維間の結合力が低下し、また、部分的に結合されない等の状態となる。このような成形体では強度が低下し、また剥離しやすくなる。また、ケナフ繊維の吸水による膨潤の力に対抗する力が小さくなり、高湿

環境への曝露による劣化が大きくなる。したがって、バインダ樹脂は、成形前材料中、10重量%以上50重量%以下であることが好ましく、より好ましくは、30重量%以上50重量%以下であると、十分な結合を達成できるとともに重量化を抑制できる。

[0023] バインダ樹脂は、公知の方法により、ケナフ繊維に分散させて付与することができる。例えば、バインダ樹脂は公知の方法により繊維に形成することができる。繊維に形成したバインダ樹脂は、ケナフ繊維の開繊処理のときに供給して混合することができる。したがって、繊維状のバインダ樹脂が混合されたケナフ繊維をウェブに形成し、適宜、絡締処理、あるいはバインダ樹脂が軟化等する温度で圧縮処理することにより、バインダ樹脂が均一に分散した成形前材料を作成することができる。

[0024] あるいは、バインダ樹脂を、有機溶媒または水に溶解または分散させて流動体に調製し、ケナフ繊維に付与することもできる。溶媒または分散媒は、水であると、乾燥によって揮発したときの作業環境の悪化を抑制できるため、好ましい。一般的なポリ乳酸系脂肪族ポリエステルは、水に不溶であるため、溶液に調製する場合は有機溶媒を使用し、分散液に調製する場合は水を使用することができる。例えば、ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルは、有機溶剤に溶解させ、この溶解したポリ乳酸系脂肪族ポリエステルを分散剤とともに水に加えて攪拌し溶剤を除去することによって、あるいは乳化重合によって重合と同時に、容易に水分散体に調製することができる。流動体に調製したバインダ樹脂は、ケナフ繊維にスプレー、ローラなど公知の塗布方法によって付与することができる。また、バインダ樹脂の浴を用意し、これにケナフ繊維を含浸させても良い。

[0025] 相溶性重合体は、ケナフ繊維とポリ乳酸系脂肪族ポリエステルの両方に対してなじみの良い重合体である。ここで、ケナフ繊維は、セルロースを主たる構成成分として有するため、たくさんの水酸基を有しており、極性が大きい、すなわち親水性の表面を有する。このため、ケナフ繊維は、同様に極性が大きい、親水性の表面を有する材料との相性が良い。一方、ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルは、アルキル鎖とアルコキシカルボニル鎖を主たる構成基とするポリマーであり、親油性が大きい。このため、極性の大きいケナフ繊維との相性、すなわちなじみは良好でなく、極性がより小さい表面を有する材料との相性が良い。

[0026] したがって、相溶性重合体は、ケナフ繊維になじむ親水性部分とポリ乳酸系脂肪族ポリエステルになじむ親油性部分とを併有するポリマーである。相溶性重合体は、好ましくは、親油性部分と親水性部分とをポリマー鎖中に分散状態で備えるポリマーであると、ケナフ繊維とポリ乳酸系脂肪族ポリエステルとの間で双方に対してより強く結合し、ケナフ繊維とポリ乳酸系脂肪族ポリエステルとの間の結合強度を良好に増大させることができる。このような相溶性重合体は、典型的には、側鎖として親水性基と親油性基を併せ持つポリマーである。このようなポリマーは、重合性二重結合を有し親水性基を有する第1の重合性単量体と、重合性二重結合を有し親油性基を有する第2の重合性単量体とを含む原料を重合することによって得られる。

[0027] 第1の重合性単量体は、重合性の二重結合部分と親水性基とを有する。重合性の二重結合は、典型的には、ビニル基または1つの水素がメチル基等に置換されたビニル基であり、例えば、アクリル酸またはメタクリル酸のエステルを用いることができる。また、親水性基は、限定されるものではないが、例えば、水酸基、アルキレンオキシド鎖、第4級アンモニウム基、スルホン酸基あるいはその塩などを挙げることができる。具体的な第1の重合性単量体には、ビニルアルコール、2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、ジヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、グリセロールジ(メタ)アクリレート、ポリエチレングリコールモノ(メタ)アクリレート、メトキシポリエチレングリコールモノ(メタ)アクリレート、ポリプロピレングリコールモノ(メタ)アクリレート、ポリエチレングリコールポリプロピレングリコールモノ(メタ)アクリレート、2-スルホエチル(メタ)アクリレート、(メタ)アクリロイルオキシトリメチルアンモニウムクロライド、(メタ)アクリロイルオキシジヒドロキシプロピルトリメチルアンモニウムクロライド、(メタ)アクリロイルオキシトリエチルアンモニウムクロライド、(メタ)アクリロイルオキシトリメチルアンモニウムメチルサルフェート、トリメチルー3-メタクリルアミドプロピルアンモニウムクロライド、ビニルスルホン酸ナトリウム塩、アリルスルホン酸アンモニウム塩、メタリルスルホン酸トリエチルアミン塩があり、これらのうち1種または2種以上を組み合わせ使用することができる。第1の重合性単量体は、バインダ樹脂の加水分解を抑制するため、活性水素を含有しない、あるいは活性水素を発生しにくい親水性基が好ましい。例えば、アルキレンオキシド鎖が好ましい。具体的には、エチレンオキシド鎖、プロピレンオキシド鎖が好ましく、

メトキシポリエチレングリコールモノ(メタ)アクリレートが好ましい。

- [0028] 第2の重合性単量体は、重合性の二重結合部分と親油性基とを有する。親油性基は、とりわけ、エポキシ基であると、脂肪族ポリエステルとの相性が極めて良いため、好ましい。また、エポキシ基は、ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルの軟化温度(熔融温度以上を含む)におけるポリ乳酸系脂肪族ポリエステルとの結合反応に対する活性をも有しており、ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルの高温高湿下における耐久性の向上に、より好ましい。第2の重合性単量体の重合性の二重結合部分は、第1の重合性単量体と同様、典型的にはビニル基、または1つの水素がメチル基等に置換されたビニル基であり、アクリル酸またはメタクリル酸のエステルを用いることができる。第2の重合性単量体は、エポキシ基を備えており、典型的には、グリシジル(メタ)アクリレートが好ましい。
- [0029] 相溶性重合体における第1の重合性単量体及び第2の重合性単量体の配合割合は、特に限定されない。このため、例えば、第1の重合性単量体と第2の重合性単量体との割合は、1:9〜9:1の重量比で所望の割合にすることができる。好ましくは、ケナフ繊維とのなじみとポリ乳酸脂肪族ポリエステルとのなじみとが同程度となるように調製される。したがって、典型的には、第1の重合性単量体:第2の重合性単量体の重量比が1:1であることが、ケナフ繊維およびポリ乳酸脂肪族ポリエステルとのなじみがより均等となって、良好な結合力を発揮するため、好ましい。
- [0030] 相溶性重合体は、第1および第2の重合性単量体とともに、他の重合性単量体を重合させて作成しても良いことはもちろんである。例えば、ラウリルアクリレートなど、直鎖アルコキシレートをも有する(メタ)アクリル酸などを含んでも良い。他の重合性単量体を含めることにより、例えば、相溶性重合体の立体規則性を制御することとも可能である。相溶性重合体は、重合性二重結合をも有する単量体の公知の重合方法を用いることができ、ラジカル重合反応または付加重合反応により作成することができるため、詳細な説明は省略する。
- [0031] 相溶性重合体の分子量は特に限定されないが、5000以上100000以下が好ましく、より好ましくは10000〜30000である。分子量が5000未満の場合、ブリードし成形後の外観不良が起こりやすい。また、分子量が100000を超える場合、相溶化の

作用が低下し曲げ物性が低下しやすい。また、分子量が10000〜30000である相溶性重合体は、ブリードしにくく相溶性が良いため、より好ましい。

- [0032] 相溶性重合体のケナフ繊維への配合割合は、特に限定されないが、その付与による効果が得られる範囲で少ないことが好ましい。これにより、ケナフ繊維およびポリ乳酸系脂肪族ポリエステルに起因する性質を良好に維持させることができる。また、これらの相溶性重合体による重量の増加やコストの増加を抑制できる。例えば、相溶性重合体の配合割合は、バインダ樹脂に対して1.0〜10.0重量%であることが好ましい。
- [0033] 相溶性重合体は、粉状、液状、繊維状などに調製することができ、混合、塗布などの方法によってケナフ繊維やバインダ樹脂に付与することができる。バインダ樹脂を繊維状に形成した場合は、ディッピングによって付与することもできる。好ましくは、バインダ樹脂に混合して、同一の液状または繊維状に形成してケナフ繊維に付与する。この方法により、バインダ樹脂であるポリ乳酸系脂肪族ポリエステルに確実に密接した状態でケナフ繊維に付与でき、またより少ない量をより均一にケナフ繊維中に分散させることができる。
- [0034] なお、成形前材料には、さらに、他の副資材を付与して良いことはもちろんである。また、特に、第1及び第2の重合性単量体の重合、特にポリ乳酸系脂肪族ポリエステルとの重合を促進すると予想される成分を付与しても良い。例えば、ジシクロヘキシルカルボジイミドといったカルボジイミドなど、脱水反応を促進できる試薬(触媒)を付与しても良い。例えば、カルボジイミドは、バインダ樹脂に対して1.0wt%付与することができるが、その量は、特に限定されない。
- [0035] このようにして作成された成形前材料を、公知の方法により、ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルを軟化状態または熔融状態にして加圧し、所望の形状に成形することができる。例えば、成形前材料をオープンなどの公知の加熱手段でバインダ樹脂として付与されたポリ乳酸系脂肪族ポリエステルの熔融温度まで加熱する。次に、常温の成形型、例えば、上下の型で挟んでポリ乳酸系脂肪族ポリエステルが固化する温度まで冷却する。その後、適宜、バリ取りなど公知の後処理をすることにより、成形体を得ることができる。

- [0036] 加熱状態において、成形前材料中のポリ乳酸系脂肪族ポリエステルは軟化溶融する。また、相溶性重合体のエポキシ基と、ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルのエステル部分とが反応し、重合し、分子量が増大したり、三次元構造が形成されたりする。また、系全体が安定化するように、相溶性重合体の親水性基はケナフ繊維となじみ、エポキシ基はポリ乳酸系脂肪族ポリエステルとなじむ配置となる。この結果、相溶性重合体が介在することにより、ケナフ繊維と相溶性重合体との間、相溶性重合体とポリ乳酸系脂肪族ポリエステルとの間に、それぞれ、ケナフ繊維とポリ乳酸系脂肪族ポリエステルとの間におけるより強い結合を形成することができる。これにより、ケナフ繊維とポリ乳酸系脂肪族ポリエステルとをより強く固定化することができる。
- [0037] この成形体の製造方法によれば、少量の相溶性重合体を混合したバインダ樹脂を調製することで、公知の方法で成形体を作成して、重量の増大を抑制して耐湿性が向上された成形体を製造することができる。特に、相溶性重合体は、バインダ樹脂に対して、例えば5%以下、あるいは1%未満などの微量だけ付与することにより、ケナフ繊維とポリ乳酸系脂肪族ポリエステルの量を大幅に変更することなく、これらの性質を備え、且つ耐湿性が向上されている成形体を得ることができる。したがって、従来と同様の用途の成形体への適用が容易である。
- [0038] また、特に親水性基としてアルキレンオキシド基を有し、親油性基としてグリシジル基を有する相溶性重合体を用いることにより、成形体中に炭素、水素、酸素以外の材料を付与しないため、燃焼時に、相溶性重合体を付与したことに起因して有害物質が発生するおそれがない。
- [0039] このようにして得られる成形体は、バインダ樹脂の量は従来と同様またはより少なくされており、重量の増大が抑制されている。また、ケナフ繊維の割合が多い状態であっても、高湿環境における膨潤が抑制されており、高湿環境への曝露後の劣化が抑制されている。例えば、本発明に係る製造方法によって作成した、ケナフ繊維が全体の70重量%で、みかけ密度が $0.7\text{g}/\text{cm}^3$ の成形体では、50℃、相対湿度95%の環境に1200時間曝露した後においても、曝露前の曲げ強さの60%以上を保持することができる。

実施例

[0040] 以下に示す方法により、本発明に係る3つの実施例と比較対照とする4つの比較例の試料を作成した。

[0041] (実施例1)

第1の重合性単量体としてのメキシポリエチレングリコールモノメタクリレートと、第2の重合性単量体としてのグリシジルメタクリレートと、ラウリルアクリレートとを49:50:1の割合で含む共重合体(以下、単に共重合体Aという。)を用意した。ポリイミド化合物として日清紡(株)製の「カルボジライトHMV-8CA」を用意した。ポリ乳酸(分子量:111,000)に対して、共重合体Aとカルボジライトとを、それぞれ5.0wt%、1.0wt%となるように付与し、混練した。その後、公知の繊維化法によって繊維化し、捲縮した後、長さ51mmとなるようにカットし、相溶性共重合体とポリ乳酸とを含む複合繊維を得た。次に、約65mmにカットしたケナフの靱皮に由来する繊維と、この複合繊維とを70:30の重量比で混合した。これを開繊してシート状に形成後、目付け1.6kg/m²となるように積層し、ニードルパンチングによって締め、マット状の成形前材料を形成した。この成形前材料を厚さ2.5mmのスペーサとともに230℃に加熱した2枚の金型の間に挟み、圧力12kg/cm²で40秒間加熱加圧成形し、プレ成形体を作成した。プレ成形体を230℃に加熱したオーブンで150秒間加熱して、プレ成形体の内部を210℃まで温度上昇させ、厚さ2.3mmのスペーサとともに2枚の金型の間に挟み、圧力12kg/cm²で30秒間加圧成形し、ボードに成形した。

[0042] (実施例2)

実施例1と同様の長さ65mmにカットしたケナフの靱皮に由来する繊維を、開繊してシート状に形成後、目付け0.9kg/m²となるように積層し、ニードルパンチングによって締め、マット状に成形した。次に、ポリ乳酸のディスパーションに実施例1と同じ共重合体Aをポリ乳酸に対して5.0wt%となるように添加した。なお、このディスパーションの固形分濃度は30%とした。このディスパーションの固形分とケナフ繊維との重量比が30:70となるように、ディスパーションをスプレーによってマット状のケナフ繊維に塗布して成形前材料を得た。次に、この成形前材料を厚さ2.5mmのスペーサとともに230℃に加熱した2枚の金型の間に挟み、圧力12kg/cm²で80秒間加熱加圧成形し、プレ成形体を作成した。プレ成形体を230℃に加熱したオーブンで15

0秒間加熱して、プレ成形体の内部を210℃まで温度上昇させ、厚さ2.3mmのスペーサとともに2枚の金型の間に挟み、圧力12kg/cm²で30秒間加圧成形し、ボードに成形した。

[0043] (実施例3)

実施例2においてポリ乳酸のディスパージョンに、ポリイミド化合物である「カルボジライトE-04」(日清紡(株)製)をポリ乳酸に対して1.0wt%を添加した他は、同じ方法を用いて、ボードを成形した。

[0044] (比較例1)

実施例1の方法において、共重合体Aをポリ乳酸に付与しない他は同様にして、ボードを作成した。

(比較例2)

実施例1の方法において、共重合体Aをポリ乳酸に付与せず、且つ複合繊維とケナフの靱皮に由来する繊維との重量比を50:50とした他は同様にして、ボードを作成した。

(比較例3)

実施例3の方法において、乳酸のディスパージョンに共重合体Aを付与しない他は同様にして、ボードを作成した。

(比較例4)

実施例3の方法において、乳酸のディスパージョンに共重合体Aを付与せず、且つケナフ繊維ヘディスパージョンをケナフ繊維:ポリ乳酸が50:50となるように塗布した他は同様にして、ボードを作成した。

[0045] (耐湿性の評価)

まず、作成した実施例1〜3及び比較例1〜4の各試料中の合成樹脂の重量平均分子量、板厚、および曲げ強さを測定した。板厚、曲げ強さは、幅50mm、長さ150mmの長方形の試験片から測定した。曲げ強さは、試験片を、支点間距離L=100mmとなるように2つの支点で支持し、両支点の間の中心位置に速度50mm/分の荷重を加え、試験片が破断する直前の最大荷重Pを測定した。なお、2つの支点および荷重作用点の曲率半径は3.2mmとした。曲げ強さは、以下の式により算出した。

[0046] 曲げ強さ(MPa) = $3PL / 2Wt^2$

ただし、P:最大荷重

L:支点間距離

W:試験片の幅(50mm)

t:試験片の厚み(2.3mm)

[0047] 次に、各試験片を温度50℃、湿度95%RHの室に設置して200、400、600、800、1000、1200時間放置後に、同じ方法で、曲げ強さを測定した。また、1200時間経過後に、重量平均分子量および板厚を測定した。高温高湿環境下への曝露前と1200時間曝露後の各試料の各値を表1に示す。また、各試料の曲げ強さの時間変化を図1に示す。

[0048] [表1]

	曲げ強度 / MPa		曲げ強度 保持率 / %	板厚 / mm		板厚膨張 率 / %	重量平均分子量	
	曝露前	曝露後		曝露前	曝露後		曝露前	曝露後
実施例 1	38	23	60	2.3	2.71	18	226,000	269,000
実施例 2	40	25	63	2.3	2.76	20	256,000	273,000
実施例 3	42	28	67	2.3	2.70	17	251,000	290,000
比較例 1	34	16	47	2.3	2.87	25	111,000	87,000
比較例 2	36	22	58	2.3	2.74	19	111,000	91,000
比較例 3	40	16	41	2.3	2.92	27	111,000	83,000
比較例 4	41	25	61	2.3	2.78	21	111,000	90,000

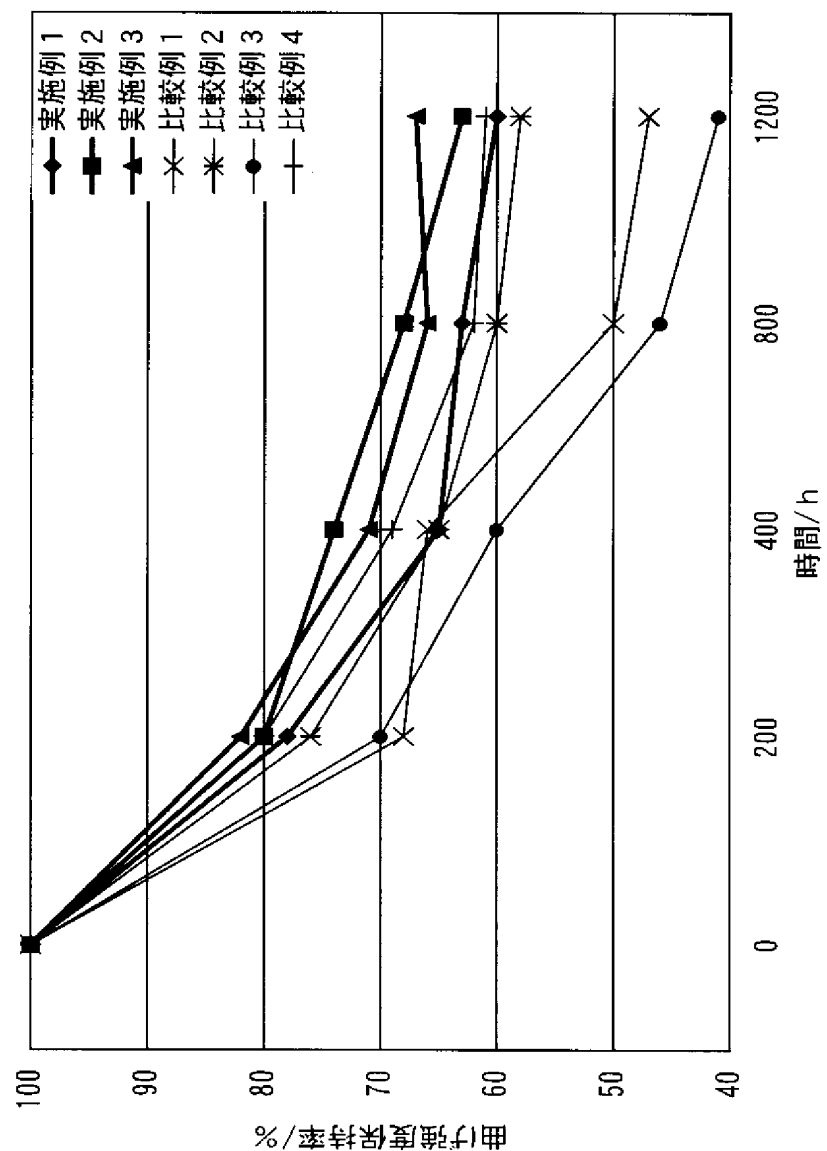
[0049] この結果より、実施例1～3の曲げ強度は、相溶性重合体を有しない比較例1～4と同等若しくは高めであることが分かった。また、図1に示すように、高温高湿下に曝露すると、その曲げ強さは減少するが、その低下の度合は、相溶性重合体を含有せず、バインダ(ポリ乳酸)の量が同じである比較例1、3と比較して緩やかであり、バインダの量がケナフ繊維に対して等量である比較例2、4と同等以上であった。具体的には、実施例1～3は、1200時間後も曲げ強さを60%以上保持しており、特に、ディスプレイの形態で相溶性重合体およびバインダを付与した実施例2、3では63%以上であった。これは、バインダを繊維に対して50:50の割合で含む比較例2、4よりも高い値であった。このように、相溶性重合体を用いることにより、バインダの量、すなわち成形体の重量を増加させることなく耐湿性を向上させられることが明らかとなった。

- [0050] また、相溶性重合体とポリイミドとを同じ配合割合で有し、バインダ及びこれらが繊維として付与された実施例1とディスパージョンとして付与された実施例3とでは、実施例3の方が曲げ強さの低下が少なかった。また、ポリイミドを含有しないがディスパージョンの形態で相溶性重合体及びバインダが付与された実施例2も、実施例1より曲げ強さの低下が小さかった。このため、ディスパージョンの形態でバインダ樹脂および相溶性重合体をケナフ繊維へ付与する方法は、耐湿性をより良好に向上させることがわかった。
- [0051] また、板厚は、実施例1〜3では、1200時間後も2.7mm台を維持しており、いずれも膨張率が20%以下であった。一方、比較例1〜4では、最も少ない場合でもバインダを繊維に対して50:50の割合で含む比較例2で19%である他は、いずれも20%を超えていた。特に、バインダ:繊維が30:70である比較例1, 3では、膨張率は25%以上であり、バインダ量が同じ割合である実施例1〜3では、膨張率が有意に抑制されていることが明らかとなった。特に、ポリイミド化合物を含む実施例1及び3では、板厚膨張率は10%台、すなわち18%以下であり、ポリイミド化合物を含まない実施例2の20%よりも少し小さかった。このことから、ポリイミド化合物を付与した試料では、板の膨張を抑制しやすい構造が形成されていることが示唆され、ポリ乳酸がより複雑な三次元構造を形成していることが予想された。
- [0052] 実施例1〜3では、いずれも成形前のポリ乳酸の分子量と比較して、成形によって得られたボード中の合成樹脂の分子量が増大していた。このことから、成形時の加熱によって、ポリ乳酸と相溶性重合体、あるいは、相溶性重合体同士が重合する反応が起こっていることが考えられる。一方、相溶性重合体が含まれない比較例1〜4では、成形前のポリ乳酸の分子量と成形されたボード中の合成樹脂の分子量とはほとんど同じであった。また、高温高湿下への1200時間の曝露後、実施例1〜3では、分子量の減少がほとんどなかったが、比較例1〜4では、20,000〜30,000程度減少し、結果として合成樹脂の分子量が10万を下回ってしまった。

請求の範囲

- [1] ケナフ繊維とポリ乳酸樹脂とから構成される木質成形体であって、成形体のみかけ密度が 0.7g/cm^3 以下であり、且つ 50°C 、相対湿度95%の環境に1200時間曝露した後の曲げ強度が曝露前の曲げ強度に対して60%以上である、木質成形体。
- [2] ケナフ繊維に、ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルと、第1の重合性単量体と第2の重合性単量体とを原料に含む相溶性共重合体とが分散状態で付与されている成形前材料を、前記ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルが軟化状態または熔融状態となる温度で加圧する工程を有し、
前記第1の重合性単量体は、重合性二重結合部分と親水性基とを有し、
前記第2の重合性単量体は、重合性二重結合部分とエポキシ基とを有することを特徴とする木質成形体の製造方法。
- [3] 第1の重合性単量体は親水性基としてアルキレンオキシド基を有する、請求項2に記載の木質成形体の製造方法。
- [4] 第1の重合性単量体及び第2の重合性単量体の和の重量比は、前記ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルの0.1～10wt%とする、請求項2または3に記載の木質成形体の製造方法。
- [5] 第1の重合性単量体をメトキシポリエチレングリコールモノ(メタ)アクリレートとし、第2の重合性単量体をグリシジル(メタ)アクリレートとする、請求項2～4のいずれかに記載の木質成形体の製造方法。
- [6] ケナフ繊維に、ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルおよび相溶性共重合体の水分散体を付与して成形前材料を作成する材料作成工程を備える、請求項2～5のいずれかに記載の木質成形体の製造方法。
- [7] ケナフ繊維に、ポリ乳酸系脂肪族ポリエステルと相溶性共重合体とを含有するバインダ繊維を混合して成形前材料を作成する材料作成工程を備える、請求項2～5のいずれかに記載の木質成形体の製造方法。

図1



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/005497

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ B27N3/04, B29C43/02//B29K1:00, B29L9:00, 31:10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ B27N3/04, B29C43/02//B29K1:00, B29L9:00, 31:10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2003-286396 A (Toray Industries, Inc.), 10 October, 2003 (10.10.03), Full text (Family: none)	1-7

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
07 April, 2005 (07.04.05)

Date of mailing of the international search report
26 April, 2005 (26.04.05)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ B27N3/04, B29C43/02 // B29K1:00, B29L9:00, 31:10

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ B27N3/04, B29C43/02 // B29K1:00, B29L9:00, 31:10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2003-286396 A (東レ株式会社) 2003.10.10 全文 (ファミリー無し)	1-7

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

07.04.2005

国際調査報告の発送日

26.4.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

郡山 順

2B

8502

電話番号 03-3581-1101 内線 3237